

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-100452

(43)Date of publication of application : 07.04.2000

(51)Int.Cl.

H01M 8/02
C25D 15/02
H01M 8/10

(21)Application number : 10-266221

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD

(22)Date of filing : 21.09.1998

(72)Inventor : NISHIDA KAZUFUMI
HADO KAZUHITO
OBARA HIDEO
GYOTEN HISAAKI

(54) SOLID HIGH POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL AND MANUFACTURE THEREFOR

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To excellently maintain the electric conductivity of a separator, to reduce the cost, and to enable long-term use by improving corrosion resistance by stacking cells through a metallic separator provided with a composite plated layer containing a water repellent material and metal on the surface.

SOLUTION: A pair of electrodes having a catalytic reaction layer are arranged by sandwiching a solid high polymer electrolyte film for selectively transporting a hydrogen ion to form a cell, fuel gas containing hydrogen is supplied to one electrode, and oxidizing agent gas containing oxygen is supplied to the other electrode. The cell is stacked for plural stages through a metallic separator to obtain a solid high polymer fuel cell. The metallic separator is constituted by forming a groove of a gas flow passage by machining a stainless steel plate by a press and also forming a composite plated layer containing a water repellent material and metal. For example, the water repellent material is desirably pitch fluoride and graphite fluoride having electron conductivity, and the metal is desirably gold, silver, nickel or chrome.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2000-100452
(P2000-100452A)

(43) 公開日 平成12年4月7日 (2000. 4. 7)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード [*] (参考)
H 0 1 M 8/02		H 0 1 M 8/02	B 5 H 0 2 6
C 2 5 D 15/02		C 2 5 D 15/02	H
H 0 1 M 8/10		H 0 1 M 8/10	

審査請求 未請求 請求項の数7 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平10-266221

(22) 出願日 平成10年9月21日 (1998. 9. 21)

(71) 出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72) 発明者 西田 和史

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72) 発明者 羽藤 一仁

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(74) 代理人 100097445

弁理士 岩橋 文雄 (外2名)

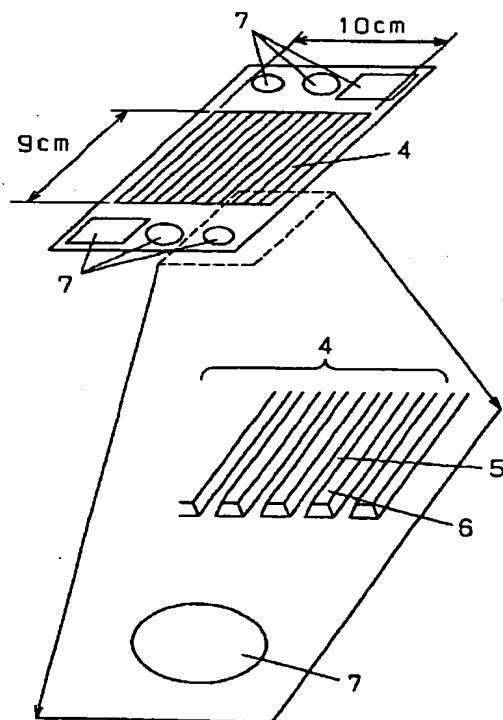
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 固体高分子電解質型燃料電池とその製造法

(57) 【要約】

【課題】 従来、固体高分子電解質型燃料電池のセパレータ板はカーボンを用い、この表面部分を切削加工して、ガス流通路を形成していた。この方法では、カーボン板の材料コストと共に、これを切削するためのコストを引き下げることが困難であった。これに替わり、金属を用いる方法が考えられるが、金属が高温で酸化性の雰囲気曝されるため、長期間使用すると金属の腐食や溶解が起こり、電池の発電効率が次第に低下するという課題があった。

【解決手段】 セパレータを構成する金属板の表面部分に、撥水性材料と金属とを含有した複合メッキ層を形成する。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 固体高分子電解質膜と、前記固体高分子電解質膜を挟んで配した触媒反応層を有する一対の電極と、前記電極の一方に水素を含有する燃料ガスを供給しかつ他方に酸素を含む酸化剤ガスを供給する手段とを具備した単電池を、金属セパレータを介して積層した固体高分子電解質型燃料電池であって、前記金属セパレータの表面に撥水性材料と金属とを含有した複合メッキ層を形成したことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項 2】 複合メッキ層を形成する撥水性材料は、電子伝導性を有することを特徴とする請求項 1 記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項 3】 複合メッキ層を形成する撥水性材料は、フッ化ピッチ、フッ化黒鉛より選ばれる少なくとも 1 種を含むことを特徴とする請求項 2 記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項 4】 複合メッキ層を形成する撥水性材料は、ポリテトラフルオロエチレン、テトラフルオロエチレンヘキサフルオロプロピレン共重合体、テトラフルオロエチレンパーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体より選ばれる少なくとも 1 種を含むことを特徴とする請求項 1 記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項 5】 複合メッキ層を形成する金属は、金、銀、ニッケル、クロムより選ばれる少なくとも 1 種を含むことを特徴とする請求項 1、2、3 または 4 記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項 6】 複合メッキ層の形成方法は、カチオン性界面活性剤と、金属イオンと、撥水性材料とを少なくとも含有し、pH を 3 以上 6 以下に調整したメッキ水溶液を用いて、電解メッキにより形成することを特徴とする請求項 1、2、3、4 または 5 記載の固体高分子電解質型燃料電池の製造法。

【請求項 7】 電解メッキ時に流す電流は、被メッキ面の面積当たり 0.1 A/cm^2 以上で 1 A/cm^2 以下の値であることを特徴とする請求項 6 記載の固体高分子電解質型燃料電池の製造法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、ポータブル電源、電気自動車用電源、家庭内コージェネシステム等に使用する固体高分子電解質を用いた燃料電池とその製造法に関する。

【0002】

【従来の技術】固体高分子電解質を用いた燃料電池は、水素を含有する燃料ガスと、空気など酸素を含有する酸化剤ガスとを、電気化学的に反応させることで、電力と熱とを同時に発生させるものである。その構造は、まず、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜の両面に、白金系の金属触媒を担持したカーボン粉末を主成

分とする触媒反応層を形成する。次に、この触媒反応層の外面に、燃料ガスの通気性と、電子伝導性を併せ持つ拡散層を形成し、この拡散層と触媒反応層とを合わせて電極とする。

【0003】次に、供給する燃料ガスが外にリークしたり、二種類の燃料ガスが互いに混合しないように、電極の周囲には高分子電解質膜を挟んでガスシール材やガスケットを配置する。このシール材やガスケットは、電極及び高分子電解質膜と一体化してあらかじめ組み立て、これを、MEA（電極電解質膜接合体）と呼ぶ。MEAの外側には、これを機械的に固定するとともに、隣接したMEAを互いに電氣的に直列に接続するための導電性のセパレータ板を配置する。セパレータ板のMEAと接触する部分には、電極面に反応ガスを供給し、生成ガスや余剰ガスを運び去るためのガス流路を形成する。ガス流路はセパレータ板と別に設けることもできるが、セパレータの表面に溝を設けてガス流路とする方式が一般的である。

【0004】この溝に燃料ガスを供給するためには、燃料ガスを供給する配管を、使用するセパレータの枚数に分歧し、その分歧先を直接セパレータ状の溝につなぎ込む配管治具が必要となる。この治具をマニホールドと呼び、上記のように燃料ガスの供給配管から直接つなぎ込むタイプを外部マニホールドと呼ぶ。このマニホールドには、構造をより簡単にした内部マニホールドと呼ぶ形式のものがある。内部マニホールドとは、ガス流路を形成したセパレータ板に、貫通した穴を設け、ガス流路の出入り口をこの孔まで通し、この孔から直接燃料ガスを供給するものである。

【0005】燃料電池は運転中に発熱するので、電池を良好な温度状態に維持するために、冷却水等で冷却する必要がある。通常、1～3セル毎に冷却水を流す冷却部をセパレータとセパレータとの間に挿入するが、セパレータの背面に冷却水流路を設けて冷却部とする場合が多い。これらのMEAとセパレータおよび冷却部を交互に重ねていき、10～200セル積層した後、集電板と絶縁板を介し、端板でこれを挟み、締結ボルトで両端から固定するのが一般的な積層電池の構造である。

【0006】このような固体高分子電解質型の燃料電池では、セパレータは導電性が高く、かつ燃料ガスに対してガス気密性がよく更に水素／酸素を酸化還元する際の反応に対して高い耐食性を持つ必要がある。このような理由で従来のセパレータは通常グラッシーカーボンや膨張黒鉛などのカーボン材料で構成し、ガス流路もその表面での切削や、膨張黒鉛の場合は型による成型で作製していた。

【0007】しかしながら近年、従来より使用されたカーボン材料に代えて、ステンレスなどの金属を用いる試みが行われている。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】従来のように、カーボン板の切削による方法は、カーボン板の材料コストと共に、切削コストを引き下げることが困難であり、また膨張黒鉛を用いた方法も材料コストが高く、これが実用化のための障害である。

【0009】また、上述の金属を用いる方法では、金属が高温で酸化性の雰囲気中に曝されるため、長時間使用すると金属の腐食や溶解が起こる。金属が腐食すると、腐食部分の電気抵抗が増大し、電池の出力が低下する。また、金属が溶解すると、溶解した金属イオンが高分子電解質に拡散し、これが高分子電解質のイオン交換サイトにトラップされ、結果的に高分子電解質自身のイオン電導性が低下する。これらの原因により、金属をそのままセパレータに使用し、電池を長期間運転すると、発電効率が次第に低下するという課題があった。

【0010】

【課題を解決するための手段】以上の課題を解決するため、本発明の固体高分子電解質型燃料電池は、固体高分子電解質膜と、前記固体高分子電解質膜を挟んで配した触媒反応層を有する一対の電極と、前記電極の一方に水素を含有する燃料ガスを供給しかつ他方に酸素を含む酸化剤ガスを供給する手段とを具備した単電池を、金属セパレータを介して積層した固体高分子電解質型燃料電池であって、前記金属セパレータの表面に撥水性材料と金属とを含有した複合メッキ層を形成したことを特徴とする。

【0011】このとき、複合メッキ層を形成する撥水性材料は、電子伝導性を有することが有用である。

【0012】特に、複合メッキ層を形成する撥水性材料は、フッ化ピッチ、フッ化黒鉛より選ばれる少なくとも1種を含むことが望ましい。

【0013】また、複合メッキ層を形成する撥水性材料は、ポリテトラフルオロエチレン、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体、テトラフルオロエチレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体より選ばれる少なくとも1種を含むことが望ましい。

【0014】また、複合メッキ層を形成する金属は、金、銀、ニッケル、クロムより選ばれる少なくとも1種を含むことが望ましい。

【0015】また、複合メッキ層の形成方法は、カチオン性界面活性剤と、金属イオンと、撥水性材料とを少なくとも含有し、pHを3以上6以下に調整したメッキ水溶液を用いて、電解メッキにより形成することを特徴とする。

【0016】このとき、電解メッキ時に流す電流は、被メッキ面の面積当たり 0.1 A/cm^2 以上で 1 A/cm^2 以下の値であることが望ましい。

【0017】

【発明の実施の形態】本発明のポイントは、固体高分子

電解質型燃料電池のセパレータを金属材料で構成し、セパレータの表面に撥水性材料と金属とを含有した複合メッキ層を形成することにある。この構成により金属を材料とする導電性セパレータの導電性を維持したまま、酸性雰囲気中に曝されても化学的不活性を維持させることが出来る。ここで用いる撥水性材料は、ポリテトラフルオロエチレンなどのポリマーを用いると、耐酸化性雰囲気に対する安定性は高くなるが、電気抵抗が増大する分、出力特性が低下する。この点、撥水性材料としてフッ化ピッチやフッ化黒鉛などの電子伝導性材料を用いると、出力特性を損ねることはない。

【0018】また、メッキ層の膜厚を厚くすると、耐酸化性雰囲気に対する安定性は高くなるが、電気抵抗が増大する分、出力特性が低下する。メッキ層の形成は、メッキ液にカチオン性界面活性剤を加え、pHを3以上6以下に調整し、被メッキ面の面積当たり 0.1 A/cm^2 以上で 1 A/cm^2 以下の値であることが望ましい。電解メッキを施すとき、電流は出来る限り小さくすると、良好な特性を有する複合メッキ層を作ることが出来るが、余り電流値を下げると、作業時間が長くな留言う、課題が発生する。

【0019】

【実施例】以下、本発明の好ましい実施例を、図面を参照しながら詳細に説明する。

【0020】（実施例1）アセチレンブラック系のカーボン粉末に、平均粒径約30の白金粒子を25重量%担持したものを電極の触媒とした。この触媒粉末をイソプロパノールに分散させた溶液に、パーフルオロカーボンスルホン酸の粉末をエチルアルコールに分散したディスページョン溶液を混合し、ペースト状にした。このペーストを原料とし、厚み $250 \mu\text{m}$ のカーボン不織布3の一方の面に、スクリーン印刷法により塗布し、電極触媒層2を形成した。形成後の反応電極中に含まれる白金量は 0.5 mg/cm^2 、パーフルオロカーボンスルホン酸の量は 1.2 mg/cm^2 となるよう調整した。

【0021】つぎに、上記の方法で作成した電極を長さおよび幅とともに 10 cm に切断し、これより一回り大きい長さおよび幅が 12 cm のプロトン伝導性高分子電解質膜1の中心部の両面に、印刷した触媒層が電解質膜側に接するようにホットプレスによって接合して、電極/電解質接合体(MEA)を作成した。ここでは、プロトン伝導性高分子電解質として、パーフルオロカーボンスルホン酸を $25 \mu\text{m}$ の厚みに薄膜化したものを用いた。

【0022】つぎに図2を用いて、セパレーターの作成方法を記述する。厚さ 0.3 mm のSUS316L製のステンレス板を用い、その中央部 $10 \text{ cm} \times 9 \text{ cm}$ の領域に、 5.6 mm ピッチ（溝幅約 2.8 mm ）の波状加工部4を、プレス加工により形成した。このとき溝5の深さ（山6の高さ）は約 1 mm とした。次に、この表面

に撥水性材料と金属とを含有した複合メッキ層を形成した。これに用いたメッキ液は、フッ化ピッチの微粉碎粒子（平均粒径 $1.3\mu\text{m}$ 、平均分子量 2000 、 F/C 原子比 $=1.3$ ）を 20g と、カチオン性界面活性剤である第3級パーフルオロアンモニウム $[\text{C}_8\text{F}_{17}\text{SO}_2\text{NH}(\text{CH}_2)_3\text{N}^+(\text{CH}_3)_3\cdot\text{Cl}^-]$ を 15g と、スルファミン酸ニッケルを 150g と、塩化ニッケルを 50g と、硼酸を 50g とを、 1000°C の水に溶かすことで作成した。

【0023】次いで、正極および負極として、それぞれニッケル板と前記の加工を施したSUS316L板をメッキ液につけ、液温 $45\pm 5^\circ\text{C}$ 、 $\text{pH}4.2$ 、電流密度 $0.5\text{A}/\text{cm}^2$ の条件で、膜厚が $7\mu\text{m}$ となるまで電解メッキを行って、ニッケルーフッ化ピッチ複合メッキ層を形成させた。このときのメッキ液の pH 調整は、上述のようにメッキ液中の硼酸の量で制御した。また前記複合メッキ処理を行った後、ニッケルーフッ化ピッチ複合メッキ層の組成を公知の方法で確認したところ、 Ni ：フッ化ピッチ $=85:15$ 重量比であった。

【0024】次に、図2に示したように、対抗する2辺にはそれぞれ水素、冷却水、空気を供給・排出するためのマニホールド孔7を設けた。

【0025】次に図3(a)に示したように、水素側となるセパレータを2個の溝5が互いに隣り合い、湾曲してつながるように樹脂でできた凸部8を重ねた。

【0026】この樹脂製の凸部8は、厚みが約 1mm でセパレータ板の山6の高さと同じとした。セパレータ板の外周部、マニホールド孔7の周囲にも同様に形成し、金属の形状に対応したガスケット10を構成している。

【0027】さらに図3(b)に示したように、空気側となるセパレータは隣り合う6個の溝5が、湾曲して連続したガス流通溝を形成するようにした。空気側と水素側で構造を変えているのは、空気側と水素側とでガス流量が25倍程度異なるからである。逆に言えば、このような構造では、ガス流量に応じて樹脂製のガス流通溝9の形状を変えることにより、最適なガス流速とガス圧損にする事が可能である。

【0028】次に、図4に示したように、これら2種類のセパレータとガスケット10により、MEA11をはさみ電池の構成単位とした。図4で示したように、水素側のガス流通溝12と空気側のガス流通溝13の位置は対応するように構成し、MEA11に過剰なセンダン力がかからないようにした。単電池を2セル積層ごとに冷却水を流す冷却部14設けた。冷却部14にはSUS316L製の金属メッシュ15を用いて導電性と冷却水の流通性を確保し、外周部とガスマニホールド部に樹脂製のガスケット10を設けることによってシール部とした。ガスケット10とMEA11、セパレータ板とセパレータ板、ガスケット10とセパレータ板などのガスシールが必要な部分はグリース16を薄く塗布することによってあまり導電性を低下させずにシール性を確保した。

【0029】以上示したMEA11を50セルを積層した後、集電板と絶縁板を介し、ステンレス製の単板と締結ロッドで、 $20\text{kgf}/\text{cm}^2$ の圧力で締結した。締結圧力は小さすぎるとガスがリークし、接触抵抗も大きいので電池性能が低くなるが、逆に大きすぎるとMEA11が破損したり、セパレータ板が変形したりするのでガス流通溝9の設計に応じて締結圧を変えることが重要であった。

【0030】比較例の電池として、上記実施例の電池のように表面コートをしなないSUS316L板により導電性セパレータを構成したものを作製した。比較例の電池で、導電性セパレータ以外は、全て上記実施例の構成と同一とした。

【0031】このように作製した本実施例と比較例の高分子電解質型燃料電池を、 85°C に保持し、一方の電極3側に 83°C の露点となるよう加湿・加温した水素を、もう一方の電極3側に 78°C の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、 50V の電池開放電圧を得た。

【0032】この電池を燃料利用率 80% 、酸素利用率 40% 、電流密度 $0.5\text{A}/\text{cm}^2$ の条件で連続発電試験を行い、出力特性の時間変化を図6に示した。その結果、比較例の電池は駆動時間と共に出力が低下するのに比べ、本実施例の電池は、 8000 時間以上にわたって 1000W ($22\text{V}-45\text{A}$)の電池出力を維持することを確認した。

【0033】この実施例ではガス流通溝9が複数の平行直線の場合を試みたが、図5のように2度の湾曲部17を経て、ガス供給マニホールド7から、ガス排出マニホールド孔7をガス流通溝9でつなぐ構造や、巻き貝の殻のように中央部のマニホールド孔7と外側のマニホールド孔7とをガス流通溝9でつなぐ構造など様々な構造も可能である。

【0034】以上の構成ではセパレータ板の表面に形成したニッケルーフッ化ピッチ複合メッキ層の膜厚を $7\mu\text{m}$ とし、また、 Ni ：フッ化ピッチ $=85:15$ 重量比としたが、膜厚を厚くするほど初期出力は低下するが、長期信頼性が向上することを確認した。さらに、 Ni ：フッ化ピッチで表わしたフッ化ピッチの組成比を高くするほど初期特性は低下するが、長期信頼性が向上することを確認した。

【0035】（実施例2）上記実施例1では、ニッケルーフッ化ピッチ複合メッキ層を形成したが、本実施例では、ニッケルーフッ化黒鉛複合メッキ層を形成し、複合メッキ層を形成する撥水性材料が電子伝導性を有するとき、特に優れた特性を与えることを示した。

【0036】実施例2の電池として、表面にニッケルーフッ化黒鉛複合メッキ層を形成したSUS316L板により導電性セパレータを構成したものを作製した。なを実施例2では、上記の複合メッキ層の構成以外は全て実

施例1と同一とした。

【0037】このように作製した実施例2の高分子電解質型燃料電池を、85℃に保持し、一方の電極3側に83℃の露点となるよう加湿・加温した水素を、もう一方の電極3側に78℃の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、55Vの電池開放電圧を得た。

【0038】この電池を燃料利用率80%、酸素利用率40%、電流密度0.5A/cm²の条件で連続発電試験を行い、出力特性の時間変化を図7に示した。実施例10の電池は、8000時間以上にわたって1089W *

* (24.2V-45A)の電池出力を維持することを確認した。

【0039】(実施例3)上記実施例1では、ニッケル-フッ化ピッチ複合メッキ層の形成を、pH4.2、電流密度0.5A/cm²の条件で行ったが、本実施例ではメッキ液のpHと電解の際の電流密度を検討した。その結果を表1に示した。なを、pHと電流密度以外は全て実施例1と同一とした。また、pHの調整は、メッキ液中の硼酸量で制御した。

【0040】

【表1】

評価番号	PH	電流密度 A/cm ²	電池出力(W)	
			初期	8000時間
1	4.2	0.05	1150	1100
2	4.2	0.1	1180	1050
3	4.2	0.5	1200	1000
4	4.2	1.0	1220	950
5	4.2	1.1	1250	700
6	4.2	2.0	1260	500
7	1	0.5	1200	100
8	2.5	0.5	1200	500
9	3	0.5	1200	900
10	6.5	0.05	1200	1100

【0041】表1において、特性は、電池の初期出力と駆動8000時間後の出力とを示した。これより、電解メッキの際の電流密度が大きいほど、長期使用により劣化が増加することを見出した。しかし、余り小さい電流密度でメッキを行うと、工程時間が多大に必要となり、実用性が損なわれる。また、メッキ液のpHを3より小さくすると、長期使用により劣化が増加することを見出した。しかし余り中性に近付け過ぎると、電解の際の電流密度を大きくすることが出来ず、工程時間が多大に必要となり、実用性が損なわれた。

【0042】この評価により、pHを3以上6以下に調整したメッキ水溶液を用いて、電解メッキ時に流す電流は、被メッキ面の面積当たり0.1A/cm²以上で1A/cm²以下が、適することを見出した。

【0043】(実施例4)実施例1では、複合メッキ層を形成する撥水性材料はフッ化ピッチを用い、また、金属としてニッケルを用いたが、本実施例では、これ以外の材料を検討した。その結果を表2に示した。

【0044】

【表2】

評価番号	金属	撥水性材料	電池出力(W)	
			初期	8000時間
11	ニッケル	PTFE	1150	980
12	ニッケル	TFE-HFP	1130	960
13	ニッケル	TFE-PFEV	1120	940
14	金	フッ化ビッチ	1200	1100
15	銀	フッ化ビッチ	1200	1020
16	クロム	フッ化ビッチ	1200	1050
17	クロム	フッ化黒鉛	1250	1060

PTFE ~ ポリテトラフルオロエチレン

TFE-HFP ~ テトラフルオロエチレン-
ヘキサフルオロプロピレン共重合体

TFE-PFEV ~ テトラフルオロエチレン-
パーフルオロエチルビニルエーテル共重合体

【0045】その結果、これに用いる金属として、金、銀、クロムまた、撥水性材料としてポリテトラフルオロエチレン（重合度約1100）、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体（重合度約1000、共重合比1：1）、テトラフルオロエチレン-パーフルオロエチルビニルエーテル共重合体（重合度約1000、共重合比1：1）が優れた特性を有することを見出した。また、上記テトラフルオロエチレン-パーフルオロエチルビニルエーテル共重合体と、同様の構造を有するテトラフルオロエチレン-パーフルオロメチルビニルエーテル共重合体（重合度約1000、共重合比1：1）やテトラフルオロエチレン-パーフルオロプロピルビニルエーテル共重合体（重合度約1000、共重*

* 合比1：1）を用いても同様の特性を得た。

【0046】ただし本実施例では、複合メッキ層の作成は、メッキ液の液温を $55 \pm 5^{\circ}\text{C}$ とし、添加する硼酸の量を調整して $\text{pH} = 5$ にし、電解電流を 0.2 A/cm^2 とし、 $1 \mu\text{m}$ の膜厚になるまで電解メッキを行った。また、用いたメッキ液は、表3に記載した組成のものに、カチオン性界面活性剤である第3級パーフルオロアンモニウム $[\text{C}_8\text{F}_{17}\text{SO}_2\text{NH}(\text{CH}_2)_3\text{N}^+(\text{CH}_3)_3 \cdot \text{Cl}^-]$ を 15 g/l と、上記の各撥水性材料を 50 g/l の割合で添加した。

【0047】

【表3】

メッキ液の種類	メッキ液の素成
金メッキ	シアン化金カリウム-10g/l、シアン化カリウム-30g/l、炭酸カリウム-30g/l
銀メッキ	シアン化銀-5g/l、シアン化カリウム-20g/l
クロムメッキ	無水クロム酸-250g/l、硫酸-2.5g/l

【0048】また、本実施例では、上記の複合メッキ層の構成以外は全て実施例1と同一とした。前記複合メッキ処理を行った後、金属-撥水材料複合メッキ層の組成を公知の方法で確認したところ、全ての撥水材料でおおよそ、金属：撥水材料=95：5の重量比であった。

【0049】以上の構成ではセパレータ板の表面に形成した金属-撥水材料複合メッキ層の膜厚を $1 \mu\text{m}$ とし、また、金属：撥水材料=95：5の重量比としたが、膜厚を厚くし、撥水材料の構成比を多くするほど初期出力

は低下するが、長期信頼性が向上することを確認した。

【0050】

【発明の効果】本発明によると、セパレータ板として、従来のカーボン板の切削工法に替わりステンレスなどの金属材料を切削加工しないで用いることができるので、量産時に大幅なコスト低減が図れる。また、セパレータを一層薄くできるので積層電池のコンパクト化に寄与する。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1の実施例の燃料電池で用いたMEAの断面を示した図

【図2】本発明の第1の実施例の燃料電池で用いた導電性セパレータの構成を示した図

【図3】本発明の第1の実施例の燃料電池で用いた水素側セパレータの構成を示した図

【図4】本発明の第1の実施例の燃料電池の積層電池の構成を示した図

【図5】本発明の第1の実施例の燃料電池で用いることができる他の導電性セパレータの構成を示した図

【図6】本発明の第1の実施例の燃料電池の出力特性を示した図

【図7】本発明の他の実施例の燃料電池の出力特性を示した図

【符号の説明】

1 高分子電解質膜

2 触媒層

3 電極

4 波状加工部

5 溝

6 山

7 マニホールド孔

8 凸部

9 ガス流通溝

10 ガasket

11 MEA

12 水素側のガス流通溝

13 空気側のガス流通溝

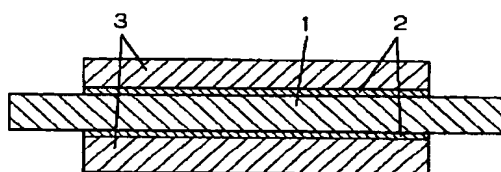
14 冷却部

15 金属メッシュ

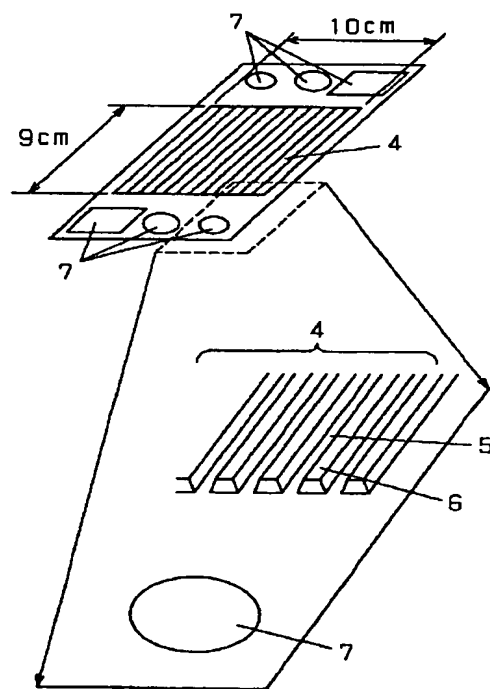
16 グリース

17 湾曲部

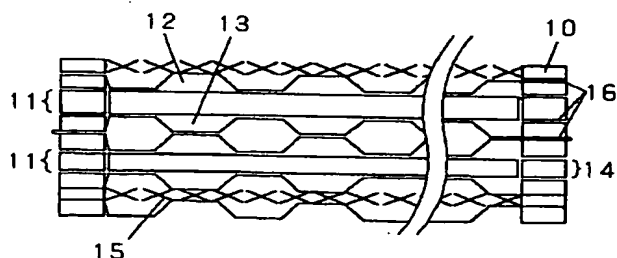
【図1】



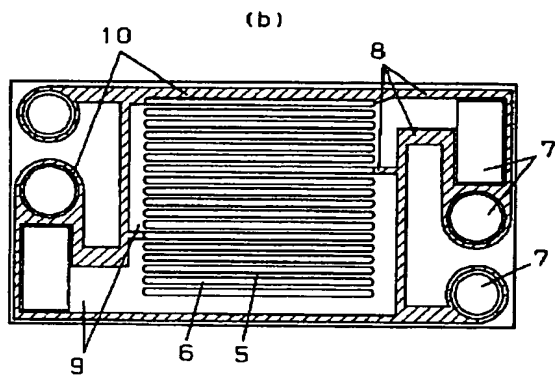
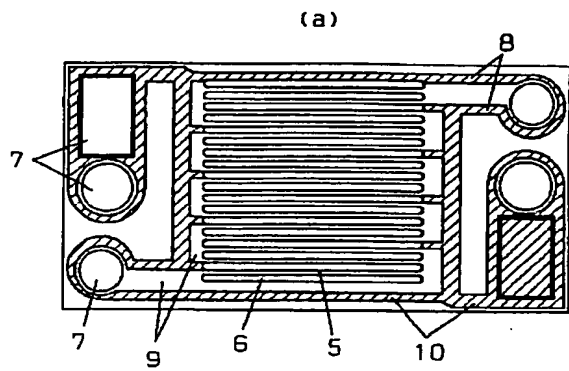
【図2】



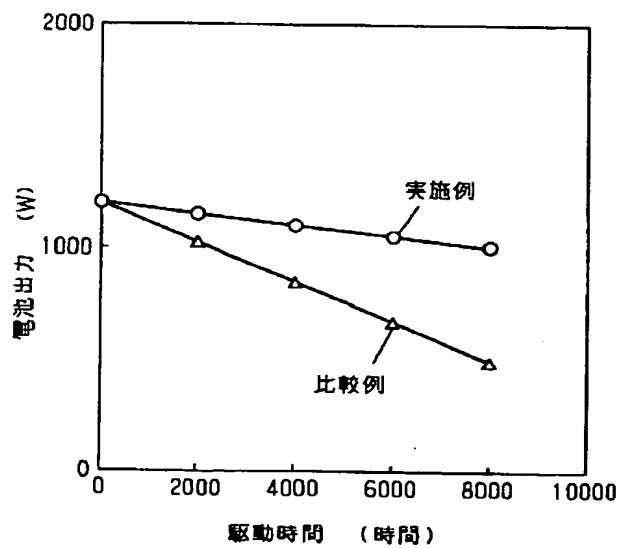
【図4】



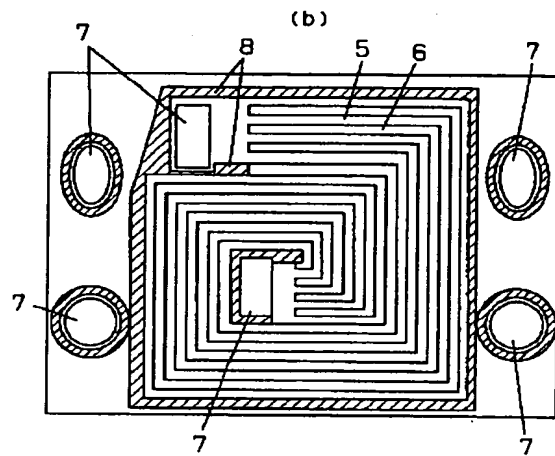
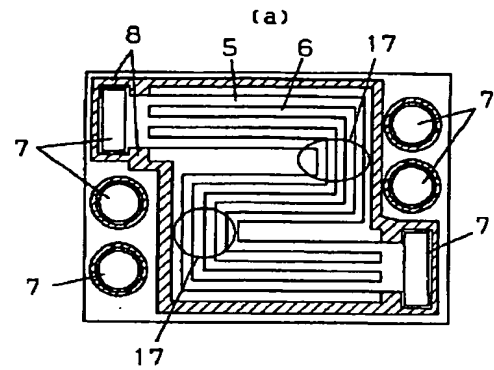
【図3】



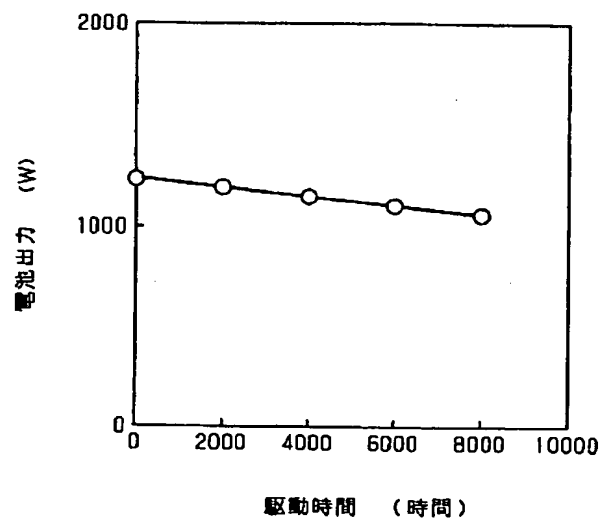
【図6】



【図5】



【図7】



フロントページの続き

(72) 発明者 小原 英夫

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72) 発明者 行天 久朗

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

F ターム (参考) 5H026 AA06 BB00 BB04 CC03 CC08
EE02 EE08 EE11 EE19 HH00
HH06